

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2001 年 6 月 21 日 (21.06.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/43729 A1

- (51) 国際特許分類⁷: A61K 9/70, 47/32 [JP/JP]; 〒841-0017 佐賀県鳥栖市田代大官町408番地 久光製薬株式会社内 Saga (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/08893
- (22) 国際出願日: 2000 年 12 月 15 日 (15.12.2000) (74) 代理人: 佐伯憲生 (SAEKI, Norio); 〒103-0027 東京都中央区日本橋三丁目15番2号 高愛ビル9階 Tokyo (JP).
- (25) 国際出願の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): AU, BR, CA, CN, ID, JP, KR, US, VN.
- (26) 国際公開の言語: 日本語 (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).
- (30) 優先権データ:
特願平 11-356482
1999 年 12 月 15 日 (15.12.1999) JP
添付公開書類:
— 国際調査報告書
— 補正書・説明書
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 久光製薬株式会社 (HISAMITSU PHARMACEUTICAL CO., INC.) [JP/JP]; 〒841-0017 佐賀県鳥栖市田代大官町408番地 Saga (JP).
2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 鶴田清美 (TSU-RUDA, Kiyomi) [JP/JP]. 池浦康弘 (IKEURA, Yasuhiro)

(54) Title: ADHESIVE PREPARATIONS

(54) 発明の名称: 貼付剤

(57) Abstract: Adhesive preparations which little irritate the skin, have an excellent stability over prolonged storage and a high heat stability and show favorable adhesiveness in using. Namely, adhesive preparations comprising a styrene-isoprene-styrene block copolymer, polyisobutylenes, a tackifier, a plasticizer and a drug component, characterized in that two or more polyisobutylenes having different average molecular weights are used in combination, the viscosity of the adhesive in the adhesive preparations ranges from 1,500 to 30,000 P (60°C), and the adhesive force thereof ranges from 5 to 200 g/10 mm.

(57) 要約:

本発明は、皮膚刺激性が低く、長期保存安定性や熱安定性に優れ、かつ使用中において良好な付着性を有する貼付剤を提供することにある。

本発明は、スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体、ポリイソブチレン、粘着付与剤、可塑剤および薬効成分からなる貼付剤において、平均分子量の異なる 2 種以上のポリイソブチレンを組合わせて使用し、かつ当該貼付剤の粘着剤の粘度が 1, 500 ~ 30,000 ポアズ (60℃) の間であり、貼付剤の粘着力が 5 ~ 200 g/10 mm であることを特徴とする貼付剤に関する。



WO 01/43729 A1

明 細 書

貼付剤

技術分野

本発明は、皮膚に適用される貼付剤に関するものである。さらに詳しくは、剥離時の毛や皮膚の引っ張り等物理的な刺激が少なく、かつ使用中において良好な付着性を有する貼付剤に関するものである。

背景技術

従来から皮膚に適用される貼付剤としては、たとえば、サリチル酸メチルやＬーメントール等の消炎鎮痛薬を膏体層に含有させた硬膏剤等がその代表的な製品として各種開発され上市されている。通常これらの貼付剤は、粘着剤がフィルムや不織布、織布等の担持体上に形成され、縫合後の皮膚を保護する目的や、肩、肘、膝、腰などの炎症に対して消炎鎮痛の目的で使用されている。

これら貼付剤は皮膚に直接適用されるために、はがれ落ちないように適度な粘着力が求められるが、その粘着性のために皮膚から剥離するときに角質層へのダメージが避けられず、かぶれを引き起こしたり、基剤成分に由来する刺激を増悪することなどが一般に知られている。

これらの欠点を克服するために、例えば特開昭 63-225314 号公報には吸水高分子を配合し、皮膚から出た汗、あるいは分泌物を吸収、吸着させることにより、ムレやかぶれを軽減することを目的とした外用貼付剤が開示されている。

また、特開平 7-157423 号公報には貼付剤の粘着力、厚み、透湿性を特定の範囲に設定することにより皮膚刺激性の軽減を目的とした経皮吸収貼付剤が開示されている。

発明の開示

しかしながらこれらの製剤は貼付中、皮膚からの分泌物や汗に含まれる刺激物に対しては有効であったが、剥離時の毛や皮膚の引っ張り等の物理的な刺激に対

しては有効でないか、または貼付時の付着性が良好な製剤とは言い難い物であった。

本発明は上記貼付剤が有する問題点を解決するためのものであって、その目的とするところは、皮膚刺激性が低く、長期保存安定性や熱安定性に優れ、かつ使用中において良好な付着性を有する貼付剤を提供することにある。

発明を実施するための最良の形態

本発明者らは上記目的を達成すべく鋭意検討を重ねた結果、基剤成分にスチレンーイソブレンースチレンブロック共重合体、粘着付与剤、可塑剤および薬効成分を含有する粘着剤に、平均分子量の異なる２種以上のポリイソブチレンを配合し、かつ当該貼付剤の粘着剤の粘度を１，５００～３０，０００ポアズ（６０℃）で、貼付剤の粘着力を５～２００ｇ／１０ｍｍとすることによって、剥離時の毛や皮膚の引っ張り等物理的な刺激を緩和させ、皮膚へのダメージを極めて抑制させることが可能であると共に長期安定性にも優れていることを見だし、本発明を完成するに至った。

この目的を達成するために、本発明の貼付剤は以下の構成を有している。

すなわち、本発明は、スチレンーイソブレンースチレンブロック共重合体、ポリイソブチレン、粘着付与剤、可塑剤および薬効成分からなる貼付剤において、平均分子量の異なる２種以上のポリイソブチレンを組合わせて使用し、かつ当該貼付剤の粘着剤の粘度が１，５００～３０，０００ポアズ（６０℃）の間であり、貼付剤の粘着力が５～２００ｇ／１０ｍｍであることを特徴とする貼付剤に関する。

より詳細には、本発明は、前記スチレンーイソブレンースチレンブロック共重合体として重量平均分子量が１００，０００～３００，０００のもので、その配合量が１０～４０質量％であることを特徴とするものであり、また、前記ポリイソブチレンとしては、粘度平均分子量が５，０００～１５，０００のものでその配合量が１～２０質量％、および粘度平均分子量が５０，０００～２００，０００のものでその配合量が０．２～１５質量％である、粘度平均分子量の異なる少なくとも２種以上のポリイソブチレンを配合してなることを特徴とするものであ

る。

また、本発明は、軟化点が60℃～150℃で、その配合量が5～50質量%の粘着付与剤を配合してなることを特徴とするものであり、また、粘度が10～100センチストークス（40℃）でその配合量が10～70質量%の可塑剤を配合してなることを特徴とするものである。

さらに、本発明は、配合量が0.001～30質量%の薬効成分を配合してなることを特徴とするものである。

なお、本発明の貼付剤においては、従来公知の充填剤、軟化剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、着香剤および溶解剤を必要に応じて配合できるものである。

本発明におけるスチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体としては、重量平均分子量が100,000～300,000のものが好ましく、たとえばクレイトンD-KX401CSまたはD-1107CU（シェル化学株式会社製）、SIS-5000またはSIS-5002（日本合成ゴム株式会社製）、クインタック3530、3421または3570C（日本ゼオン株式会社製）、ソルブレン428（フィリップペトロリアム株式会社製）などが挙げられる。本発明のスチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体はこれらの1種または2種以上配合することができる。その配合量は10～50質量%、好ましくは13～40質量%、より好ましくは15～30質量%の範囲である。

本発明のスチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体として前記した重量平均分子量を有するものを、前記した配合割合で使用すること、より好ましくはさらに粘度及び粘着力を調整することにより、皮膚への付着性、剥離時の痛み、皮膚のかぶれ等が大きく改善される。尚、これらの配合量が10質量%未満になると凝集力や保型性等が低下し好ましくない。また、配合量が50質量%以上になると基剤の凝集力が増加し粘着力の低下、膏体の不均一化、作業性の低下等を招き好ましくない。

本発明は、平均分子量の異なる2種以上のポリイソブチレンを組合わせて使用することを特徴のひとつとするものであり、例えば、粘度平均分子量（Stauffer法）が5,000～15,000のポリイソブチレンと、粘度平均

分子量が50,000～200,000のポリイソブチレンとの組合わせが好ましい。そして、これらのポリイソブチレンを特定の配合量で配合したものがさらに好ましい。

粘度平均分子量が5,000～15,000のポリイソブチレンとしては、ビスタネックスLM-MS、LM-MH、(エクソン化学株式会社製)、テトラックス4T、5T、および6T(日本石油化学株式会社製)、オパノールB12SFおよびB15SF(BASFジャパン株式会社製)などが挙げられ、これらの1種または2種以上配合することができる。その配合量は1～20質量%、好ましくは2～18質量%、より好ましくは4～15質量%であり、これらの配合量が1質量%未満になると粘着力が不足し好ましくない。また、配合量が20質量%以上になると凝集力や保型性等が低下し好ましくない。

粘度平均分子量が50,000～200,000のポリイソブチレンとしては、ビスタネックスMML-80、MML-100、MML-120、およびMML-140(エクソン化学株式会社製)、オパノールB80、B100、B120およびB150(BASFジャパン株式会社製)などが挙げられ、これらの1種または2種以上配合することができる。その配合量は0.1～20質量%、好ましくは1～18質量%、より好ましくは3.6～10質量%であり、これらの配合割合にすること、より好ましくはさらに粘度及び粘着力を調整することにより、粘着力、長時間の皮膚への付着性、剥離時の痛み、皮膚のかぶれ等が大きく改善される。尚、これらの配合量が0.1質量%未満になると凝集力や保型性等が低下し好ましくない。また、配合量が20質量%以上になると基剤の凝集力が増加し粘着力の低下、膏体の不均一化、作業性の低下等を招き好ましくない。

本発明の貼付剤に用いられる粘着剤の粘度は、1,500～30,000ポアズ(60℃)、好ましくは2,000～20,000ポアズ(60℃)であり、かつ貼付剤の粘着力は5～200g/10mm、好ましくは20～150g/10mmである。また、本発明の好ましい貼付剤としては、貼付剤の粘度の値(ポアズ(60℃))を貼付剤の粘着力の値(g/10mm)で割った比(粘度の値/粘着力の値)が、10～200、好ましくは30～150のものである。即ち、本発明の貼付剤の粘度の値(ポアズ(60℃))が、貼付剤の粘着力の値(g/10

mm) の 10 ~ 200 倍、好ましくは 30 ~ 150 倍の範囲にあることが好ましい。したがって、本発明はこの比の値を用いることにより、スチレンーイソブレンースチレンブロック共重合体、ポリイソブチレン、粘着付与剤、可塑剤および薬効成分からなる貼付剤において、当該貼付剤の粘着剤の粘度が 1,500 ~ 30,000 ポアズ (60℃) の間であり、貼付剤の粘着力が 5 ~ 200 g/10 mm であって、貼付剤の粘度の値 (ポアズ (60℃)) が、貼付剤の粘着力の値 (g/10 mm) の 10 ~ 200 倍の範囲にあることを特徴とする貼付剤に関するということもできる。このような物性を示す貼付剤を使用することにより、長時間の皮膚への付着性、剥離時の痛み、皮膚のかぶれ及び角質層へのダメージを低く押さえることが可能である。尚、これらの物性値を逸脱した場合は、屈曲部位への付着性、剥離時の痛み、角質層へのダメージ、皮膚のかぶれ、ベタツキ等について好ましくないものとなる。

本発明の粘着剤は、スチレンーイソブレンースチレンブロック共重合体、ポリイソブチレン、粘着付与剤及び可塑剤からなる粘着成分であり、スチレンーイソブレンースチレンブロック共重合体、ポリイソブチレン及び粘着付与剤の配合量を調整した後、可塑剤により前記の粘度になるように調製することができる。

本発明の貼付剤の粘着力は、貼付剤の粘着力であり、主として粘着剤の組成を調整することにより調製することができる。

したがって、本発明の貼付剤は、粘着成分の配合量を前記した粘度及び粘着力に調整することを特徴とするものである。

粘着付与剤としては、軟化点が 60℃ ~ 150℃ のものが好ましく、たとえばロジンエステル、水添ロジンエステル、マレイン酸変性ロジンエステル、ポリテルペン樹脂、石油樹脂等を用いることができ、具体的にはエステルガム A、A A - G、H、または HP (荒川化学株式会社製)、ハリエスター L、S、または P (播磨化成株式会社製)、バインクリスタル KE - 100、または KE - 311 (荒川化学株式会社製)、ハーコリン D (理化ハーキュレス株式会社製)、フォーラル 85、または 105 (理化ハーキュレス株式会社製)、ステベライトエステル 7、または 10 (理化ハーキュレス株式会社製)、ペントリン 4820、ま

たは 4740（理化ハーキュレス株式会社製）、アルコン P-85、または P-100（荒川化学株式会社製）エスコレッツ 5300（エクソン化学株式会社製）、クリアロン K、M、または P（ヤスハラケミカル株式会社製）などが挙げられ、これらの 1 種または 2 種以上を配合することができる。その配合量は 5～50 質量%、好ましくは 7～45 質量%、より好ましくは 10～40 質量%であり、粘度及び粘着力が前記した範囲になるように調整される。この配合割合にすることにより粘着力、皮膚への付着性、剥離時の痛み、皮膚のかぶれ等が大きく改善される。尚、これらの配合が 5 質量%未満になると粘着力、皮膚への付着性の低下を招き好ましくない。また 50 質量%以上になると、保型性能を低下させ、剥離時の痛み、角質層へのダメージ、皮膚のかぶれ、ベタツキ等が増加し好ましくない。

可塑剤としては、溶液粘度が 10～100 センチストークス（40℃）のものが好ましく、たとえばアーモンド油、オリーブ油、ツバキ油、パーシク油、ラッカセイ油、オレフィン酸、流動パラフィンなどが挙げられ、これらを 1 種または 2 種以上配合することができる。その配合割合は 10～70 質量%、好ましくは 15～60 質量%、より好ましくは 20～55 質量%であり、粘度及び粘着力が前記した範囲になるように調整される。この配合割合にすることにより粘着力、皮膚への付着性、薬物の基剤中均一分散性、剥離時の痛み、角質層へのダメージ、皮膚のかぶれ及び熱安定性等が大きく改善される。なお、これらの配合が 10 質量%未満になると粘着力、皮膚への付着性、薬物の分散性を低下させ、膏体粘度の増加により膏体の不均一化、作業性の低下を招き好ましくない。また 70 質量%以上になると薬物の経皮吸収性、保型性能を低下させ、剥離時の痛み、角質層へのダメージ、皮膚のかぶれ、ベタツキ等が増加し好ましくない。

薬効成分としてはたとえば L-メントール、カンフル、ハッカ油、トウガラシエキス、カプサイシン、ニコチン酸ベンジルエステル、サリチル酸エステル、サリチル酸グリコール等の皮膚刺激剤、イブプロフェン、ピロキシカム、ケトプロフェン、インドメタシン、スプロフェン、ロキソプロフェン、ジクロフェナクナ

トリウム、フルルビプロフェン、フェルビナク、ケトロラク等の鎮痛消炎剤、クエン酸フェンタニル、塩酸モルヒネ等の麻薬性鎮痛剤、ペンタゾシン、酒石酸ブトルファノール、塩酸ブプレノルフィン、臭化水素酸エブタゾシン等の非麻薬性鎮痛剤、塩酸オキシブチニン等の排尿障害治療剤、クロトリマゾール、ビフォナゾール、硝酸ミコナゾール、塩酸ブテナフィン、塩酸テルピナフィン、チオコナゾール、ラノコナゾール、塩酸アモロルフィン、塩酸ネチコナゾール等の抗真菌剤、酪酸ヒドロコルチゾン、デキサメタゾン、酪酸デキサメタゾン、ベタメタゾン、吉草酸ベタメタゾン、プロピオン酸デブロドン、プレドニゾロン、フルオシノニド、フルオシノロンアセトニド等の副腎皮質ホルモン剤、アミノ安息香酸エチル、塩酸テトラカイン、塩酸プロカイン、塩酸リドカイン等の局所麻酔剤、塩酸プロプラノロール、ピンドロール、塩酸カルテオロール、マレイン酸チモロール等の β -遮断薬、ニトログリセリン、硝酸イソソルビド、ニフェジピン、塩酸ジルチアゼム、ジピリダモール等の冠血管拡張剤、塩酸ジフェンヒドラミン、マレイン酸クロルフェニラミン、塩酸クレゾール等の抗ヒスタミン剤、硫酸サルブタモール、塩酸プロカテロール、クロモグリク酸ナトリウム、トラニラスト、ケトチフェン、アゼラスチン等の鎮咳去痰剤または抗アレルギー剤、プロカテロール、塩酸イソプロテレロール、テオフィリン等の気管支喘息治療剤、その他にブロスタグランジン類、ホルモン、生薬エキス、ビタミン類等より1種または2種以上配合することができる。その配合割合は0.001~30質量%、好ましくは0.01~16質量%であり、医学的に許容される無機塩または有機塩の形態も含まれ、この配合割合にすることにより薬効を十分に期待することができる。尚、これらの配合が0.001質量%未満になると十分な薬効を発揮することができず、また30質量%以上になると薬効成分によるかぶれを引き起こしたり、粘着剤層の保形性能を低下させ、ベタツキ等が増加し好ましくない。

また、本発明の支持体としては、特に限定されるものではなくたとえば、材質はポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブタジエン、ポリエステル、ナイロン、ポリウレタン等のフィルム、織布または不織布より選択される。

これらの中でもポリエステル織布は風合いもよく使用感も良好であるので好適に使用される。また、これらの支持体の目付（単位面積当たりの質量）は $70 \sim 130 \text{ g/cm}^2$ であることが好ましく、その厚さは $0.1 \sim 2 \text{ mm}$ であることが好ましい。支持体の目付又は厚さが前記下限値未満である場合は貼付作業において貼付剤（積層体）にシワが寄ったり絡み付いたりして良好な使用感が得られにくくなる傾向にあり、他方、前記上限値を超えると貼付剤（積層体）の柔軟性が不十分となり、貼付時に引きつれ感等の違和感を生じる傾向にある。

本発明の支持体は伸縮性を有していてもよく、本発明に使用される伸縮性支持体の 50% 伸長時荷重は、好ましくは長辺方向、短辺方向ともに $0.98 \sim 14.71 \text{ N/5 cm}$ であり、より好ましくは長辺方向に $1.96 \sim 9.81 \text{ N/5 cm}$ 、短辺方向に $0.98 \sim 9.81 \text{ N/5 cm}$ である。支持体の 50% 伸長時荷重が前記下限値未満であると積層体にいわゆるコシがなくなって貼付剤をしっかりと支持できなくなり、貼付作業において良好な使用感が得られにくくなる傾向にある。他方、支持体の 50% 伸長時荷重が前記上限値を超えると皮膚への追従性が不十分となり、ひじやひざ等の関節部位に貼付する場合に少しの動きに対しても剥がれやすくなる傾向にある。なお、本発明にかかる 50% 伸長時荷重とは、JIS 一般織物試験法 L1096の「伸長力」の項における方法にて、 1.5 kgf 荷重時の伸びの 80% を、つかみ間の距離の 50% とした以外は同様の試験方法に基づき測定した値をいう。すなわち、本発明に関わる 50% 伸長時荷重とは、長辺及び短辺方向とも試料長 30 cm 、試料幅 5 cm の試験片を、JIS Z 0237に規定される引張り試験機を用いてつかみ間の距離を 20 cm とし引張り速度 200 mm/分 で引張り、試験辺のつかみ間の距離に対する伸び率が 50% （試験辺のつかみ間の距離が 30 cm となることをいう）となるときの単位幅あたりの力 $[5 \text{ N/cm}]$ をいう。

また、本発明に使用される伸縮性支持体の 50% 伸長時回復率は、好ましくは長辺方向、短辺方向ともに $50 \sim 95\%$ であり、より好ましくは長辺方向に $50 \sim 95\%$ 、短辺方向に $60 \sim 90\%$ である。積層体の 50% 伸長時回復率が前記

下限値未満であると皮膚への追従性が不十分となり、ひじやひざ等の関節部位に貼付する場合に少しの動きに対しても剥がれやすくなる傾向にある。他方、積層体の50%伸長時回復率の増加に伴い皮膚への追従性は向上するが、前記上限値を超えると貼付作業において貼付剤（積層体）にシワや絡み付きが生じやすくなり、良好な使用感が得られにくくなる傾向にある。なお、本発明にかかる50%伸長回復率とは、JIS 一般織物試験法 L1096の「伸長回復率及び残留ひずみ率」のA法（繰返し定速定伸長法）において、1.5kgf荷重時の伸びの80%を、つかみ間の距離の50%とした以外は同様の試験方法に基づき測定した値をいう。すなわち、本発明に関わる50%伸長回復率とは、長辺及び短辺方向とも試料長30cm、試料幅5cmの試験片を、JIS Z 0237に規定される引張り試験機を用いてつかみ間の距離を20cmとし引張り速度200mm/分で試験辺のつかみ間の距離に対する伸び率が50%（試験辺のつかみ間の距離が30cmになることをいう）となるまで引き伸ばした後1分間放置するステップと、200mm/分で元の位置まで戻して3分間放置するステップと、を5回繰返した後、さらに200mm/分で引き伸ばす際に、初荷重点までの距離（残留ひずみ）をつかみ間の距離から差し引いた値を、つかみ間の距離で割った値[%]をいう。

本発明の貼付剤においては、従来公知の他の添加剤をさらに配合することもできる。例えば、従来公知の充填剤としては、酸化亜鉛、酸化アルミニウム、二酸化チタン、炭酸カルシウム、合成ケイ酸アルミニウム、シリカ類、酸化マグネシウム、酸化防止剤としてはアスコルビン酸、酢酸トコフェロール、天然ビタミンE、ジブチルヒドロキシトルエン、没食子酸プロピル等、紫外線吸収剤としては2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、サリチル酸グリコール、2-（2-ヒドロキシ-5-メチルフェニル）ベンゾトリアゾール等、芳香剤、あるいは溶解剤としてはオレイン酸、サリチル酸グリコール、ベンジルアルコール、ミリスチン酸イソプロピル、クロタミトン、オレイルアルコール、ハッカ油、ユーカリ油、リモネン、イソプレゴール、またはその他の製油類、あるいは界面活性剤等を必要に応じて配合できるものである。

次に、本発明の貼付剤の製造方法について説明する。まず、スチレンーイソブレンースチレンブロック共重合体及びポリイソブチレンに、粘着付与剤、可塑剤を加えて粘度及び粘着力を調整し、充填剤、および酸化防止剤等を適宜所定の割合で加え混合物となし、窒素ガス雰囲気下で加熱攪拌して溶解物とする。攪拌時の温度は110～200℃であり、攪拌時間は30～120分間である。次に、薬効成分を前記溶解物の攪拌時温度が110～200℃の範囲内で添加し1～30分間混合して均一な溶解物を得る。次に、この溶解物を通常の方法で直接支持体に展延した後、剥離被覆物で覆うか、あるいは一旦剥離被覆物に展延した後、支持体を覆い圧着転写させてもよい。剥離被覆物は剥離処理を施した剥離紙、セロファン、またはポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエステル等のフィルムから適宜選択できる。

なお、前記製造方法における各原料、薬効成分またはその他の成分を配合する順序は、その一例を述べたにすぎず、本発明はこの配合順序に限定されるものではない。

本発明の貼付剤は、スチレンーイソブレンースチレンブロック共重合体、及び平均分子量の異なる2種以上のポリイソブチレンを組み合わせ使用し、かつ前記した特定の粘度及び粘着力に調整することにより、これらの成分並びに粘着付与剤、可塑剤および薬効成分のみを主剤としても、以下の優れた特徴を有する貼付剤とすることができる。

- ① 剥離時の痛みが著しく緩和される。
- ② 角質層へのダメージが著しく緩和される。
- ③ 皮膚に対する安全性が高いので、人体に直接適用できる。
- ④ 粘着性（粘着力）、凝集性が優れている。
- ⑤ 保型性がよく熱による変化を受けにくい。

次に本発明の貼付剤の実施例を示すが、必ずしも下記の処方に限定されるものではない。なお、「%」は質量%を意味する。

実施例

実施例 1

スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 (クレイトン D-1107CU)	22.0%
ポリイソブチレン (テトラックス 6T)	15.0%
ポリイソブチレン (オパノール B80)	7.0%
水添ロジンエステル (ステベライトエステル 7)	12.0%
流動パラフィン (クリストール J-352)	40.0%
ジブチルヒドロキシトルエン	1.0%
フェルビナク	3.0%

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体にはポリエステル素材の伸縮性織布を使用した。

実施例 2

スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 (クレイトン D-KX401CS)	16.0%
ポリイソブチレン (ビスタネックス LM-MS)	10.0%
ポリイソブチレン (ビスタネックス MML-140)	14.0%
水添ロジンエステル (フォーラル 105)	18.0%
流動パラフィン (クリストール J-352)	37.0%

ケトプロフェン

4 . 0 %

Ｌ－メントール

1 . 0 %

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体にはポリエステル素材の伸縮性織布を使用した。

実施例 3

スチレン－イソプレン－スチレンブロック共重合体 2 5 . 0 %

(クレイトン D－1 1 0 7 C U)

ポリイソブチレン 3 . 0 %

(テトラックス 5 T)

ポリイソブチレン 1 . 0 %

(ビスタネックス M M L－1 4 0)

水添ロジンエステル 1 0 . 0 %

(フォーラル 8 5)

流動パラフィン 5 0 . 0 %

(クリストール J－3 5 2)

インドメタシン 5 . 0 %

クロタミトン 6 . 0 %

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体にはポリエステル素材の織布を使用した。

実施例 4

スチレン－イソプレン－スチレンブロック共重合体 1 5 . 0 %

(クレイトン D－1 1 0 7 C U)

ポリイソブチレン 1 3 . 0 %

(ビスタネックス L M－M H)

ポリイソブチレン 1 3 . 0 %

(ビスタネックス M M L－1 0 0)

マレイン酸変性ロジンエステル 1 3 . 0 %

(マルキード)

流動パラフィン 35.0%

(クリストール J-352)

サリチル酸グリコール 5.0%

レーメントール 6.0%

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体にはポリエステル素材の織布を使用した。

実施例 5

スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 29.0%

(SIS-5000)

ポリイソブチレン 16.0%

(オパノール B15SF)

ポリイソブチレン 1.0%

(オパノール B120)

石油樹脂 18.0%

(アルコン P-85)

流動パラフィン 23.0%

(クリストール J-352)

二酸化チタン 3.0%

サリチル酸メチル 5.0%

レーメントール 5.0%

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体にはポリエステル素材の織布を使用した。

実施例 6

スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 15.0%

(SIS-5000)

ポリイソブチレン 5.0%

(オパノール B 1 5 S F)

ポリイソブチレン 1 5 . 0 %

(オパノール B 1 2 0)

石油樹脂 1 8 . 0 %

(エスコレッツ 5 3 0 0)

流動パラフィン 3 3 . 0 %

(クリストール J - 3 5 2)

酸化亜鉛 3 . 0 %

サリチル酸メチル 8 . 0 %

L - メントール 3 . 0 %

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体にはポリエステル素材の織布を使用した。

実施例 7

スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 2 3 . 0 %

(D - K X 4 0 1 C S)

ポリイソブチレン 1 4 . 0 %

(テトラックス 6 T)

ポリイソブチレン 8 . 0 %

(ビスタネックス M M L - 1 0 0)

石油樹脂 1 5 . 0 %

(アルコン P - 1 0 0)

流動パラフィン 2 4 . 0 %

(クリストール J - 3 5 2)

サリチル酸グリコール 8 . 0 %

L - メントール 8 . 0 %

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体にはポリエステル素材の織布を使用した。

実施例 8

スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 (D-KX401CS)	20.0%
ポリイソブチレン (テトラックス4T)	17.0%
ポリイソブチレン (ビスタネックスMML-140)	6.0%
ポリテルペン樹脂 (クリアロンK-100)	14.0%
流動パラフィン (クリストールJ-352)	30.0%
サリチル酸グリコール	10.0%
L-メントール	3.0%

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体にはポリエステル素材の織布を使用した。

実施例 9

スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 (クインタック3570C)	17.0%
ポリイソブチレン (ビスタネックスLM-MS)	2.0%
ポリイソブチレン (オパノールB150)	1.0%
水添ロジンエステル (ステベライトエステル7)	28.0%
流動パラフィン (クリストールJ-352)	41.0%
サリチル酸グリコール	5.0%
L-メントール	6.0%

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体には塩化ビニル素材のフィルムを使用した。

実施例 10

スチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体 (クレイトンD-1107CU)	15.0%
ポリイソブチレン (テトラックス4T)	10.0%
ポリイソブチレン (ビスタネックスMML-120)	17.0%
石油樹脂 (アルコンP-100)	20.0%
流動パラフィン (クリストールJ-352)	24.0%
サリチル酸メチル	8.0%
Ｌ－メントール	6.0%

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体には塩化ビニル素材のフィルムを使用した。

実施例 11

スチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体 (クレイトンD-1107CU)	22.0%
ポリイソブチレン (テトラックス5T)	10.0%
ポリイソブチレン (ビスタネックスMML-100)	7.0%
水添ロジンエステル (フォーラル85)	28.0%
流動パラフィン	24.0%

(クリストール J - 3 5 2)

フルルビプロフェン	4 . 0 %
クロタミトン	5 . 0 %

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体には塩化ビニル素材のフィルムを使用した。

実施例 1 2

スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 (クレイトン D - 1 1 0 7 C U)	2 3 . 0 %
ポリイソブチレン (テトラックス 5 T)	8 . 0 %
ポリイソブチレン (ビスタネックス M M L - 1 0 0)	8 . 0 %
水添ロジンエステル (フォーラル 8 5)	2 6 . 0 %
流動パラフィン (クリストール J - 3 5 2)	3 4 . 9 9 %
吉草酸ベタメタゾン	0 . 0 1 %

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体には塩化ビニル素材のフィルムを使用した。

比較例 1

スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 (クレイトン D - 1 1 0 7 C U)	1 8 . 0 %
ポリイソブチレン (ビスタネックス L M - M H)	1 5 . 0 %
水添ロジンエステル (K E - 3 1 1)	1 4 . 0 %
流動パラフィン	4 8 . 0 %

(クリストール J - 3 5 2)

ケトプロフェン	2 . 0 %
L - メントール	3 . 0 %

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体にはポリエステル素材の織布を使用した。

比較例 2

スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 (D - K X 4 0 1 C S)	1 8 . 0 %
ポリイソブチレン (ビスタネックス M M L - 1 0 0)	1 0 . 0 %
水添ロジンエステル (K E - 3 1 1)	1 4 . 0 %
流動パラフィン (クリストール J - 3 5 2)	4 9 . 0 %
インドメタシン	4 . 0 %
クロタミトン	5 . 0 %

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体にはポリエステル素材の織布を使用した。

比較例 3

スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 (クレイトン D - K X 4 0 1 C S)	2 8 . 0 %
水添ロジンエステル (K E - 3 1 1)	1 4 . 0 %
流動パラフィン (クリストール J - 3 5 2)	4 8 . 0 %
サリチル酸グリコール	5 . 0 %
L - メントール	5 . 0 %

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体にはポリエステル素材の織布を使用した。

比較例 4

スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 (クレイトン D-1107CU)	28.0%
水添ロジンエステル (KE-311)	42.0%
流動パラフィン (クリストール J-352)	20.0%
サリチル酸グリコール	5.0%
L-メントール	5.0%

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体にはポリエステル素材の織布を使用した。

比較例 5

スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 (SIS-5000)	17.0%
水添ロジンエステル (エステルガム H)	52.0%
流動パラフィン (クリストール J-352)	21.0%
サリチル酸グリコール	5.0%
L-メントール	5.0%

この処方では上記製造方法に従い作製し、所望の大きさに裁断し貼付剤とした。
支持体には塩化ビニル素材のフィルムを使用した。

比較例 6

アクリル酸 2-エチルヘキシルエステル	55.0%
---------------------	-------

アクリル酸メトキシエチルエステル	26.0%
酢酸ビニル	14.7%
アゾビスイソブチロニトリル	0.3%
フェルピナク	4.0%

アクリル酸 2-エチルヘキシルエステル、アクリル酸メトキシエチルエステル、酢酸ビニル、アゾビスイソブチロニトリルを反応容器に入れ、窒素雰囲気下にて 65℃ に昇温して重合を開始させ、固形分濃度が 50% になるよう酢酸エチルを滴下しながら温度を制御して 10 時間反応を続け、さらに 80℃ で 2 時間熟成して共重合体溶液を得た。得られた共重合体溶液にフェルピナクを添加混合し、離型被覆物上に展延し乾燥後、塩化ビニル素材のフィルムを覆い圧着転写させ所望の大きさに裁断し貼付剤とした。

試験例 1（粘着力試験）

あらかじめ 25℃ の恒温室内に 30 分以上放置した貼付剤を幅 20 mm、長さ約 100 mm の面に調製する。同様に 25℃ の恒温室内に 30 分以上放置した幅 25 mm、長さ 50 mm のフェノール樹脂製の試験板に一端をあわせて幅 20 mm、長さ 50 mm に速やかにはり付け、直ちに重量 800 g のゴムローラーを 1 分間 300 mm の速さで本品の上を 2 回通過させる。その後直ちに 25℃ 恒温室内にて本品の試験板に貼り付けた自由端を 180 度角に折り返して、その粘着面に幅 20 mm、長さ約 100 mm の非伸縮性のフィルムをはり付け、引張り試験機を用い、本品の非伸縮性のフィルムをはり付けた自由端は上部に、試験端は下部に留金で堅くはさみ、1 分間 300 mm の速さで連続して引きはがし、試験開始 20 mm～40 mm の間の荷重平均値を測定した。その結果を表 1 に示す（参考：第 13 改正日本薬局方、「絆創膏」、D-871 項）。

試験例 2（粘度試験）

膏体粘度は島津製作所製島津フローテスタにより測定した。あらかじめ 60℃ に保たれた面積 100 mm²、高さ 40 mm の円筒状シリンダ内に、膏体約 2 g を充填し、5 分放置する。シリンダの下部には直径 0.5 mm 長さ 1 mm の細管を

持つダイをあらかじめ取り付けしておく。5分放置後直ちに加重10kgでシリンダ上部の100mm²の面をピストンにより加圧する。シリンダ下部のダイの細管から溶融し押し出された膏体の流量を測定し膏体粘度を求めた。その結果を表1に示す（参考：島津フローテストCFT-100C取扱説明書、35項）。

表 1

	粘着力 (g / 10 mm)	粘度 (ポアズ)
実施例 1	4 2	3 2 0 0
実施例 2	5 3	7 5 4 0
実施例 3	3 6	4 4 3 0
実施例 4	5 2	2 5 2 0
実施例 5	6 1	2 2 8 0
実施例 6	4 7	3 3 5 0
実施例 7	6 2	4 6 2 0
実施例 8	5 4	3 2 5 0
実施例 9	1 2 3	8 5 3 0
実施例 10	1 4 5	1 2 8 3 0
実施例 11	1 3 5	1 8 3 2 0
実施例 12	1 1 5	1 0 5 6 0
比較例 1	5	1 2 0 0
比較例 2	4 3	1 8 8 9 0
比較例 3	3 3	1 3 2 6 0 0
比較例 4	2 1 4	6 7 5 3 0
比較例 5	2 0 4	7 5 5 2 0
比較例 6	2 5 8	3 5 2 1 0

試験例 3 (官能貼付試験)

実施例 1～5、9～10 および比較例 1～6 について、健常成人男性 30 名を対象にした官能貼付試験を実施した。試料はそれぞれ異なる日に肘に 6 時間貼付した。なお、貼付剤のサイズは全ての実施例及び比較例とも幅 70 mm、長さ 100 mm とした。その結果を表 2 に示す。本発明のものは比較例に対し、付着性、および剥離時の痛みとも優れていた。

表 2

	付着性			剥離時の痛み		
	剥がれて いない	端の部分 剥離	1/4以上 剥離	痛くない	やや痛い	痛い
実施例 1	25	4	1	24	6	0
実施例 2	28	2	0	26	4	0
実施例 3	24	4	2	22	7	2
実施例 4	26	3	1	28	2	0
実施例 5	24	5	1	24	6	0
実施例 9	22	5	3	23	6	1
実施例 10	24	4	2	22	8	0
実施例 11	22	6	2	24	5	1
比較例 1	0	2	28	27	3	0
比較例 2	2	8	20	20	8	2
比較例 3	0	4	26	30	0	0
比較例 4	28	2	0	0	2	28
比較例 5	0	1	29	0	7	23
比較例 6	0	0	30	0	5	25

試験例 4（角質剥離量測定試験）

実施例 2、4、7、9 および比較例 4、5 について、1 c m 角に切り取った試料を健常成人男子の前腕に 3 0 分貼付し電子顕微鏡にて観察したとき、試料面積に対する角質が付着した粘着剤面積の割合にて評価した。その結果を表 3 に示す。本発明のものは比較例に対し角質剥離量が非常に少なかった。

表 3

	角質剥離面積
実施例 2	5 % 以下
実施例 4	1 5 %
実施例 7	1 0 %
実施例 9	1 5 %
比較例 4	9 0 % 以上
比較例 5	9 0 % 以上
比較例 6	9 0 % 以上

試験例 5（皮膚安全性試験 1（健常人パッチテスト））

実施例 2、4 および比較例 4 について、健常成人男子 3 0 名を対象として、上腕内側に 4 8 時間クロードパッチテストを行い、剥離後 1 時間および 2 4 時間後の貼付部位の皮膚の状態を判定した。なお、試験に用いた貼付剤のサイズは直径 2 c m の円とした。その結果を表 4 に示す。本発明のものは皮膚安全性に優れていた。

表 4

剥離後の 経過時間		判 定					合 計 (人)	陽 性 率 ± 以上
		+++	++	+	±	-		
1 時間	実施例 2	-	-	-	5	2 5	3 0	1 6 . 7
	実施例 4	-	-	-	5	2 5	3 0	1 6 . 7
	比較例 5	-	-	-	1 1	1 9	3 0	3 6 . 7
	日局絆創膏	-	-	-	7	2 3	3 0	2 3 . 3
2 4 時間	実施例 2	-	-	-	4	2 6	3 0	1 3 . 3
	実施例 4	-	-	-	6	2 4	3 0	2 0 . 0
	比較例 5	-	-	-	4	2 6	3 0	1 3 . 3
	日局絆創膏	-	-	-	5	2 5	3 0	1 6 . 7

パッチテスト判定基準

- : 無反応
- ± : わずかな紅斑
- +: 明らかな紅斑
- ++ : 紅斑+丘疹または浮腫
- +++ : 紅斑+丘疹、浮腫+小水疱

試験例 6 (熱安定性試験 1)

実施例 1、3、4、5、6、7、8、12 および比較例 1、2、3 について幅 70 mm、長さ 100 mm の貼付剤とし、アルミニウムを主体とする複合フィルムにて、40℃で3ヶ月間密封保存した。開封後、上述した粘着力試験を実施し、初期値に対する低下率により評価した。結果を表 5 に示す。本発明のものは比較例に対し粘着力の低下が少なかった。

表 5

	粘着力低下率
実施例 1	8 %
実施例 2	1 1 %
実施例 3	8 %
実施例 4	1 0 %
実施例 5	1 2 %
実施例 6	1 3 %
実施例 7	1 2 %
実施例 8	1 0 %
比較例 1	4 1 %
比較例 2	3 2 %
比較例 3	3 3 %
比較例 4	5 5 %

試験例 7（熱安定性試験 2）

実施例 9、10、11、12 および比較例 5、6 について、おのおの 3 cm × 3 cm の正方形に打ち抜き、アルミニウムを主体とする複合フィルムにて、60℃で3ヶ月間密封保存した。開封後、粘着剤の舌出し幅と粘着剤面のべたつきを観察した。結果を表 6 に示す。

本発明のものは比較例に対し舌出し幅が狭く、また、べたつきもなく熱安定性に優れていた。

表 6

	舌出し幅	べたつき	評価
実施例 9	0 . . 5 mm 以下	なし	○
実施例 1 0	0 . . 5 mm 以下	なし	○
実施例 1 1	0 . . 5 mm 以下	なし	○
実施例 1 2	0 . . 5 mm 以下	なし	○
比較例 5	2 . . 0 mm	あり	×
比較例 6	1 . . 5 mm	あり	×

産業上の利用可能性

本発明の貼付剤は、貼付剤に用いられる粘着剤の粘度ならびに貼付剤の粘着力をある特定の範囲内に設定することにより、剥離時の痛みが少なく角質層へのダメージが著しく緩和され、皮膚に対する安全性が高く、熱安定性に優れ、さらに付着性が良好であるため、医療用貼付剤の各種用途に利用することができ、産業上極めて有用なものである。

請 求 の 範 囲

1. スチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体、ポリイソブチレン、粘着付与剤、可塑剤および薬効成分からなる貼付剤において、ポリイソブチレンとして平均分子量の異なる2種以上で組合わせ、かつ当該貼付剤の粘着剤の粘度が1,500～30,000ポアズ（60℃）の間であり、貼付剤の粘着力が5～200g/10mmであることを特徴とする貼付剤。
2. スチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体の重量平均分子量が100,000～300,000で、配合量が10～50質量%である請求の範囲第1項に記載の貼付剤。
3. 粘度平均分子量が5,000～15,000であるポリイソブチレン1～20質量%、及び粘度平均分子量が50,000～200,000であるポリイソブチレン0.1～20質量%の少なくとも2種以上を配合してなることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の貼付剤。
4. 粘着付与剤の軟化点が60℃～150℃で、配合量が1～50質量%であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の貼付剤。
5. 可塑剤の粘度が10～100センチストークス（40℃）で、配合量が10～70質量%であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の貼付剤。
6. 薬効成分の配合量が0.001～30質量%であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の貼付剤。

補正書の請求の範囲

〔2001年4月23日（23.04.01）国際事務局受理：出願当初の請求の範囲3は取り下げられた；出願当初の請求の範囲1は補正された；他の請求の範囲は変更なし。（1頁）

1. （補正後）スチレンーイソブレンースチレンブロック共重合体、ポリイソブチレン、粘着付与剤、可塑剤および薬効成分からなる貼付剤において、ポリイソブチレンとして粘度平均分子量が5,000～15,000であるポリイソブチレン1～20質量%、及び粘度平均分子量が50,000～200,000であるポリイソブチレン0.1～20質量%を配合してなり、かつ当該貼付剤の粘着剤の粘度が1,500～30,000ポアズ（60℃）の間であり、貼付剤の粘着力が5～200g/10mmであることを特徴とする貼付剤。

2. スチレンーイソブレンースチレンブロック共重合体の重量平均分子量が100,000～300,000で、配合量が10～50質量%である請求の範囲第1項に記載の貼付剤。

3. （削除）

4. 粘着付与剤の軟化点が60℃～150℃で、配合量が1～50質量%であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の貼付剤。

5. 可塑剤の粘度が10～100センチストークス（40℃）で、配合量が10～70質量%であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の貼付剤。

6. 薬効成分の配合量が0.001～30質量%であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の貼付剤。

条約 19 条に基づく説明書

請求の範囲第 1 項は、ポリイソブチレンの平均分子量及び配合量を請求の範囲第 3 項に記載の「粘度平均分子量が 5, 000～15, 000 であるポリイソブチレン 1～20 質量%、及び粘度平均分子量が 50, 000～200, 000 であるポリイソブチレン 0.1～20 質量%」と限定することにより、引用例 1 との違いを明確にしたものである。

引用例 1 は、低分子量ポリイソブチレンの粘度平均分子量が、10, 000～100, 000 であり、高分子量ポリイソブチレンの粘度平均分子量が、500, 000～2, 500, 000 である（引用例 1 の第 3 頁第 25 行～第 4 頁第 1 行及び請求の範囲第 7 項）。

従って、補正後の本願発明は、新規性を具備した貼付剤の発明であり、しかも、この基剤処方によって、貼付剤に用いられる粘着剤の粘度ならびに貼付剤の粘着力をある特定の範囲内に設定したことにより、医療用貼付剤として使用した場合における剥離時の痛みが少なくなり、角質層へのダメージが著しく緩和され、皮膚に対する安全性が高い、熱安定性に優れている、付着性が良好である、等の顕著な効果を奏するに到ったものである（本願明細書第 26 頁の産業上の利用可能性の項）。

請求の範囲第 3 項は、その内容を請求の範囲第 1 項に組み入れたため、これを削除した。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

National application No.

PCT/JP00/08893

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ A61K 9/70, 47/32

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ A61K 9/00-9/72, 47/00-47/48

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CA (STN), REGISTRY (STN), WPI (DIALOG)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO, 95/31190, A1 (Hisamitsu Pharmaceutical Co., Inc.), 23 November, 1995 (23.11.95), whole description, especially, Claims 3, 4, 7; examples 4 to 7, 10, 11, 13, 16 to 18, 20 to 22, 25 to 28 & AU, 9524544, A & EP, 760238, A1 & US, 5770221, A & KR, 97703137, A	1-6
Y	EP, 374980, A2 (Nitto Denko Corporation), 27 June, 1990 (27.06.90), whole description & CA, 2006511, A & JP, 4-99720, A & US, 5571530, A	1-6
Y	EP, 374980, A2 (Nitto Denko Corporation), 27 June, 1990 (27.06.90), whole description & CA, 2006511, A & JP, 4-99720, A & US, 5571530, A	1-6
Y	US, 4776850, A (Guse et al.), 11 October, 1988 (11.10.88), whole description,	1-6

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not
considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing
date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is
cited to establish the publication date of another citation or other
special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other
means
"P" document published prior to the international filing date but later
than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or
priority date and not in conflict with the application but cited to
understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
considered novel or cannot be considered to involve an inventive
step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
considered to involve an inventive step when the document is
combined with one or more other such documents, such
combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
09 March, 2001 (09.03.01)

Date of mailing of the international search report
21 March, 2001 (21.03.01)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/08893

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>& DE, 3518707, A & JP, 61-271219, A & ZA, 8603625, A & CA, 1267606, A & KR, 9406105, B1</p> <p>JP, 11-152222, A (NICHIBAN COMPANY, LIMITED), 08 June, 1999 (08.06.99), whole description (Family: none)</p>	1-6

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ A61K 9/70, 47/32

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ A61K 9/00-9/72, 47/00-47/48

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CA(STN), REGISTRY(STN), WPI(DIALOG)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	WO, 95/31190, A1 (久光製薬株式会社), 23. 11月. 1995 (23. 11. 95), 明細書全体の記載, 特に, 請求項3, 4, 7, 実施例4-7, 10, 11, 13, 16-18, 20-22, 25-28 の記載 & AU, 9524544, A & EP, 760238, A1 & US, 5770221, A & KR, 97703137, A	1-6
Y	EP, 374980, A2 (Nitto Denko Corporation), 27. 6月. 199 0 (27. 06. 90), 明細書全体の記載 & CA, 2006511, A & JP, 4-99720, A & US, 5571530, A	1-6

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

09. 03. 01

国際調査報告の発送日

21.03.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

高原 慎太郎

4C

9053

電話番号 03-3581-1101 内線 3452

C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	EP, 374980, A2 (Nitto Denko Corporation), 27. 6月. 1990 (27. 06. 90), 明細書全体の記載 & CA, 2006511, A & JP, 4-99720, A & US, 5571530, A	1-6
Y	US, 4776850, A (Guse et al.), 11. 10月. 1988 (11. 10. 88), 明細書全体の記載 & DE, 3518707, A & JP, 61-271219, A & ZA, 8603625, A & CA, 1267606, A & KR, 9406105, B1	1-6
A	JP, 11-152222, A (ニチバン株式会社), 8. 6月. 1999 (08. 06. 99), 明細書全体の記載 (ファミリーなし)	1-6